

Mesures de spectrométrie et de dosimétrie neutron aux postes de travail pour l'étalonnage de dosimètres individuels PGP-DIN

C. ITIÉ¹, H. MULLER¹, B. ASSELINEAU¹, R. MÉDIONI¹, P. CROVISIER²,
P. VALIER-BRADIER², J.E. GROETZ³, J. PIOT³

(Manuscrit reçu le 3 juillet 2002, accepté le 29 septembre 2002)

RÉSUMÉ

Dans le cadre de la mise en application des recommandations décrites dans la publication 60 de la CIPR, des mesures de spectrométrie neutron ont été réalisées à plusieurs postes de travail au CEA de Valduc. Le but de ces mesures était la détermination de nouveaux coefficients d'étalonnage à affecter aux dosimètres individuels neutron PGP-DIN afin de restituer correctement les doses reçues par les opérateurs séjournant à ces postes. Ces mesures ont été effectuées au cours de deux campagnes successives. La fluence neutronique et le débit d'équivalent de dose ambiant $\dot{H}^*(10)$ ont été mesurés en fonction de l'énergie avec le spectromètre ROSPEC et un système de sphères de BONNER. Les champs de radiations étant toutefois mixtes, c'est-à-dire présentant une composante neutronique et photonique, des mesures de débits d'équivalent de dose ambiant photon aux postes de travail considérés ont également été réalisées à l'aide de débitmètres d'ambiance. Les dosimètres individuels PGP-DIN ont été positionnés sur un fantôme (ISO) d'eau. Des calculs effectués à l'aide du code MCNP ont été comparés aux résultats expérimentaux.

ABSTRACT

Neutron spectrometry and dosimetry measurement at workplaces for calibration of individual PGP-DIN dosimeters.

Measurements to determine new coefficients for individual neutron dosimeters PGP-DIN complying with the ICRP 60 recommendations were performed at two workplaces at the CEA of Valduc: a storage room and a plutonium reprocessing plant. Two spectrometry campaigns were performed allowing a better assessment of doses received by operators working at these workplaces. Neutron energy fluence and ambient dose equivalent rate $\dot{H}^*(10)$ distributions were measured as function of neutron energy by using the ROSPEC device and BONNER spheres spectrometer. The radiation field being mixed neutron and gamma, the gamma component was also evaluated: neutron and photon dose-rate meters were used to evaluate the ambient dose rate equivalent. Individual dosimeters were positioned on an ISO water slab phantom. In addition, calculations were performed using the MCNP simulation code for different configurations.

¹ Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire, DPHD, B.P. 17, 92262 Fontenay-aux-Roses Cedex, France.

² CEA, Direction des applications militaires, Service de protection contre les rayonnements, Centre de Valduc, 21120 Is-sur-Tille, France.

³ Université de Franche-Comté, Laboratoire de microanalyses nucléaires, 16 route de Gray, 25030 Besançon Cedex, France.

1. Introduction

Dans le cadre de la mise en application des dernières recommandations 60 de la CIPR (ICRP, 1990), le laboratoire d'études et de recherches en dosimétrie externe de l'IRSN, en collaboration avec le service de protection contre les rayonnements ionisants du CEA de Valduc et le laboratoire de microanalyses nucléaires de l'université de Franche-Comté, a effectué deux campagnes de mesures dans un local de stockage de composés de plutonium et auprès de boîtes à gants de fluoration et de pesée du plutonium. Sont ici présentés les résultats obtenus auprès des deux postes de travail les plus pénalisants en terme de dosimétrie neutron. Ces résultats expérimentaux seront comparés aux simulations réalisées avec le code Monte Carlo MCNP. Les résultats expérimentaux complets des deux campagnes sont donnés en référence (Itié *et al.*, 2001). Cette étude a permis de déterminer les nouveaux coefficients d'étalonnage à affecter aux dosimètres personnels PGP-DIN (Buxerolle, 1987), afin de restituer de manière satisfaisante les doses reçues par les opérateurs séjournant devant ces postes de travail.

2. Moyens mis en œuvre

Les matériels de mesures utilisés sont composés de deux types de débitmètres neutron, de deux systèmes de spectrométrie, de dosimètres passifs thermoluminescents et de débitmètres photons. Une modélisation a également été réalisée à l'aide d'un code Monte Carlo (MCNP, 1997).

2.1. Débitmètres neutron

Les mesures de débit d'équivalent de dose ambiant $\dot{H}^*(10)$ ont été réalisées à l'aide des débitmètres :

- Berthold LB6411,
- Harwell N91.

Ces débitmètres sont constitués de compteurs proportionnels à hélium-3 placés au centre d'une sphère en polyéthylène. Chaque appareil a été au préalable étalonné auprès de sources de référence, préconisées par les normes ISO (ISO-8529, 2001), à savoir : ^{252}Cf , $(^{252}\text{Cf} + \text{D}_2\text{O})_{\text{Cd}}$ et Am-Be.

2.2. Spectromètres neutron

Les différentes distributions en énergie des neutrons ont été déterminées par le système ROSPEC (Ing *et al.*, 1997 ; Toms, 1971) complété par un scintillateur liquide NE213 et un système de sphères de BONNER (Bramblett *et al.*, 1959) :

- le ROSPEC est composé de 4 compteurs proportionnels (3 remplis d'hydrogène et 1 rempli d'un mélange argon-méthane) placés sur une

plate-forme rotative permettant de détecter des neutrons d'énergie comprise entre 57 keV et 4,5 MeV. Vient en complément un scintillateur liquide de type NE213 couvrant un domaine en énergie de 2 MeV à 20 MeV. Ainsi, l'ensemble permet la détermination de la distribution en énergie (spectre) de la fluence neutronique et du débit d'équivalent de dose ambiant entre 57 keV et 20 MeV ;

- le système de sphères de BONNER type F (Bramblett *et al.*, 1959) est constitué d'un compteur proportionnel rempli d'hélium-3 et d'un ensemble de 12 sphères de polyéthylène permettant d'obtenir la distribution en énergie (spectre) de la fluence neutronique et le débit d'équivalent de dose ambiant pour des neutrons d'énergie comprise entre 0,01 eV et 20 MeV.

2.3. Débitmètres photons

Trois radiamètres (FH40 GL10, Scintomat 6134A et Babyline) et un système de mesure photonique comportant deux détecteurs Geiger-Müller de sensibilités différentes et dont les réponses en énergie légèrement différentes permettent, en plus de la mesure du débit d'équivalent de dose ambiant, une estimation de l'énergie moyenne des photons.

2.4. Dosimètres à étalonner

Plusieurs dosimètres individuels à albédo de type « PGP-DIN » (Buxerolle, 1987), fournis par le laboratoire d'exploitation dosimétrique de l'IRSN et utilisés sur le centre de Valduc, ont été placés sur des fantômes ISO (30 × 30 × 15 cm) en PMMA et positionnés aux différents points de mesures.

Le dosimètre PGP-DIN est composé, dans son principe, de deux pastilles thermoluminescentes, l'une à base de ^7LiF et l'autre de ^6LiF . Ces deux détecteurs ont une sensibilité identique aux photons. Cependant le ^6LiF a une réponse très importante aux neutrons de basses énergies, alors que le ^7LiF est pratiquement insensible aux neutrons. Ces deux types de détecteurs sont lus sur le même lecteur. Lorsque ce dosimètre est irradié en champ mixte, la différence de signaux issus des deux types de détecteurs (6 et 7) est représentative de l'équivalent de dose neutron seulement.

Ce dosimètre est surtout sensible aux thermiques et sa réponse décroît très vite avec l'énergie des neutrons. De ce fait, un coefficient d'étalonnage doit être déterminé à chaque poste de travail.

2.5. Code Monte Carlo MCNP

Chaque configuration de mesure a été modélisée afin d'estimer en chaque point la fluence neutronique et le débit d'équivalent de dose ambiant. Ces calculs ont été

effectués à l'aide du code Monte Carlo, tridimensionnel et multi-groupes (MCNP, 1997) prenant en compte les bibliothèques de sections efficaces continues ENDF/B6 ainsi que les coefficients de conversion « fluence neutronique » de la publication 74 de la CIPR (ICRP, 1996). Le spectre neutronique source retenu dans ces modélisations est celui produit par du PuF_4 . Il a été obtenu à l'aide du code SOURCES 4A (Wilson & Co., 1993) ; son énergie moyenne est de 1,5 MeV. Ce spectre devrait représenter correctement le terme source auprès des boîtes à gants. Dans le local de stockage, le PuF_4 est accompagné de divers composants qui n'ont pas été pris en compte dans la simulation.

3. Postes de travail étudiés

Les postes de travail retenus dans cette étude sont les postes les plus pénalisants en terme de dosimétrie neutron sur le centre de Valduc. En voici les caractéristique :

- un entreposage constitué de 9 rangées (364 casiers au total) contenant du plutonium sous différentes formes physico-chimiques (Pu métal, PuO_2 et PuF_4) séparées par des allées permettant l'accès des opérateurs. L'émission neutronique dans le stockage est due à 80 % aux réactions (α , n) sur les éléments légers comme l'oxygène et le fluor, le reste provient des fissions spontanées des isotopes pairs du plutonium. Deux points de mesures ont été retenus : le premier est situé dans l'allée principale, au centre du stockage ; le second, entre les deux rangées où le débit de dose ambiant est maximum ;
- une cellule comprenant une boîte à gants utilisée pour la fluoration du plutonium. Dans ce cas, l'émission neutronique est principalement due aux réactions des particules alpha du plutonium sur le fluor. Il faut noter également la présence d'écrans de protection biologique en kiowaglass autour des boîtes à gants permettant de diminuer le débit d'équivalent de dose gamma et neutron. Les mesures ont été effectuées à l'emplacement occupé par les opérateurs pendant les manipulations des produits, c'est-à-dire à 60 cm de la charge, avec et sans écran de protection.

4. Résultats

4.1. Les mesures de la composante neutronique dans le local de stockage

4.1.1. Débit d'équivalent de dose ambiant neutron

Le tableau I présente les valeurs des débits d'équivalent de dose ambiant obtenus aux deux points de mesure dans le local de stockage.

TABLEAU I
Débits d'équivalent de dose ambiant neutron dans le local de stockage du plutonium.
Neutron ambient dose equivalent rate in the storage.

Appareil utilisé	Milieu du stockage $\dot{H}^*(10)$ $\mu\text{Sv/h}$	Entre deux rangées $\dot{H}^*(10)$ $\mu\text{Sv/h}$
(1) Berthold LB 6411	72 ± 11	133 ± 20
(2) Harwell N 91	77 ± 12	146 ± 22
(3) Multisphère (0,01 eV–16 MeV)	73 ± 11	145 ± 22
Multisphère (60 keV–16 MeV)	62 ± 9	127 ± 19
ROSPEC+ NE213 (60 keV–16 MeV)	64 ± 9	122 ± 18
Moyenne sur (1, 2, 3)	74 ± 7	141 ± 13
Calcul MCNP	89 ± 4	135 ± 5

Les incertitudes sont données ici, comme dans la suite du document, avec un facteur d'élargissement $k = 2$ (2σ) correspondant à un intervalle de confiance de 95 %.

L'ensemble des résultats montre une bonne cohérence entre les valeurs obtenues avec les différentes techniques de mesures et la simulation numérique. La valeur moyenne de $\dot{H}^*(10)$ a été calculée en utilisant les 3 détecteurs qui couvrent entièrement le domaine d'énergie des neutrons thermiques jusqu'à 20 MeV. Les valeurs estimées par le système Multisphère et le ROSPEC associé au NE213 sont en très bon accord pour leur domaine énergétique commun.

4.1.2. Spectres neutroniques mesurés et calculés

Les spectres obtenus (Figs. 1 et 2) montrent un bon accord entre les deux systèmes de spectrométrie pour leur domaine commun en énergie (57 keV–20 MeV). La composante thermique et épithermique varie en fonction des points de mesures et est due en partie aux neutrons diffusés par les matériaux présents dans la cellule et par les murs. Le spectre calculé par MCNP est une bonne approximation des spectres mesurés. Le léger décalage vers les hautes énergies avec une énergie moyenne du pic rapide de 1,5 MeV (Fig. 1) peut s'expliquer par l'approximation faite dans la simulation (voir § 2.5.) d'un terme source composé uniquement de PuF_4 .

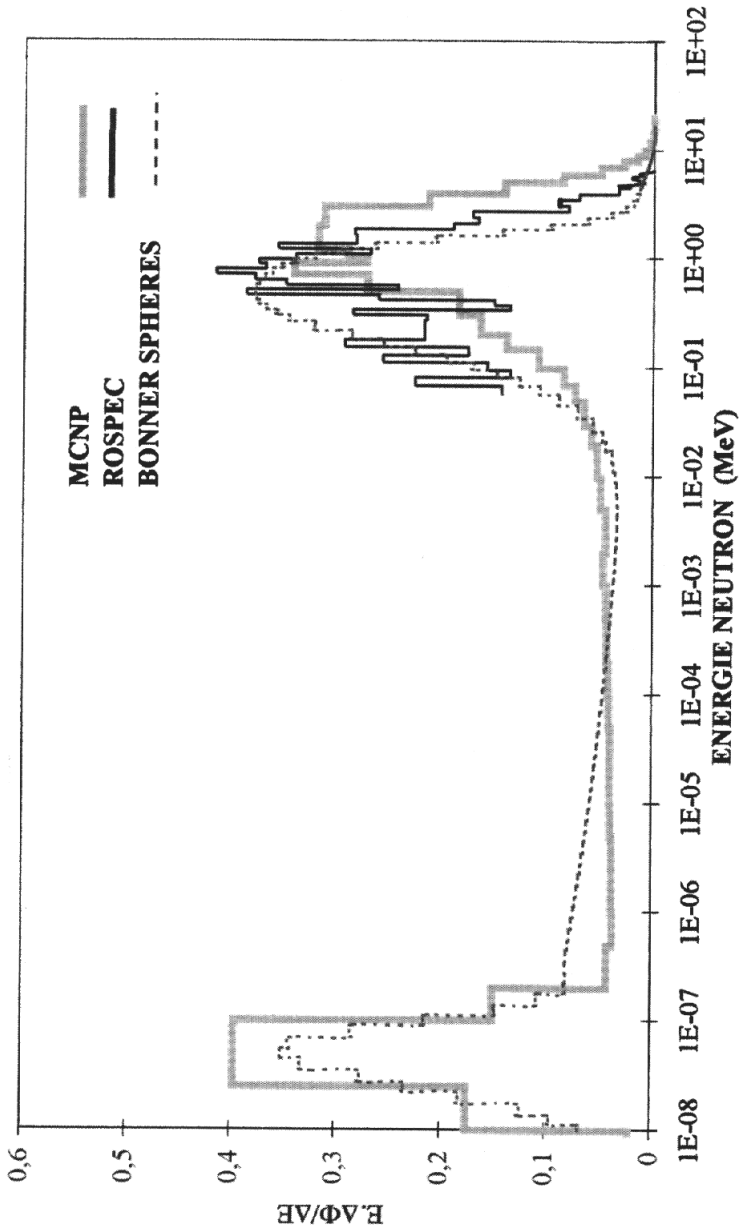


Figure 1 – Spectres MCNP, ROSPEC et multisphères au centre du stockage.
MCNP, ROSPEC and BONNER spheres spectra in the center of storage.

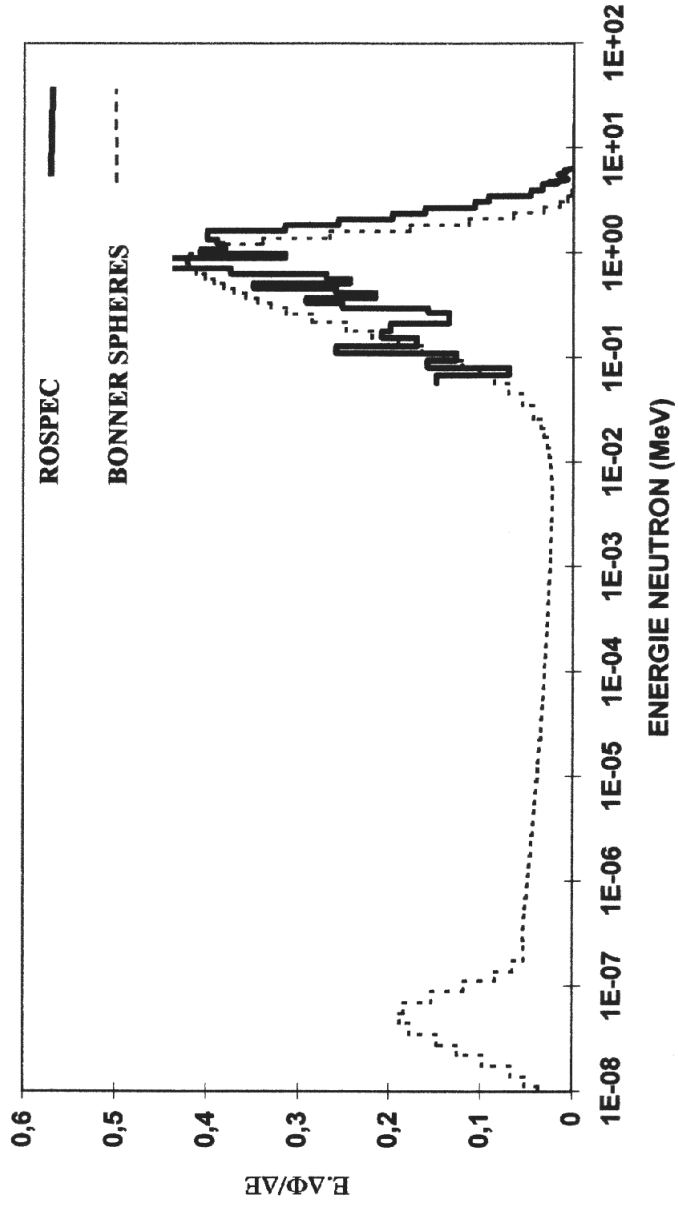


Figure 2 - Spectres ROSPEC et multisphères entre deux rangées dans le local de stockage.
ROSPEC and BONNER spheres spectra between two rows.

TABLEAU II

Débits d'équivalent de dose ambiant neutron près de la boîte à gants « fluoration du plutonium ».
Neutron ambient dose equivalent rate near the glove box "plutonium fluoration".

Appareil utilisé	fluoration du plutonium avec écran $\dot{H}^*(10)$ $\mu\text{Sv/h}$	fluoration du plutonium sans écran $\dot{H}^*(10)$ $\mu\text{Sv/h}$
(1) Harwell N91	72 ± 11	146 ± 22
(2) Berthold LB 6411	70 ± 11	144 ± 22
Rospec + NE213 (57 keV à 6,5 MeV)	67 ± 10	144 ± 22
Moyenne (1, 2)	71 ± 8	145 ± 16
Calcul MCNP	71 ± 3	146 ± 6

4.2. Les mesures de la composante neutronique auprès de la boîte à gants « fluoration du plutonium »

4.2.1. Débit d'équivalent de dose ambiant neutron

Les mesures ont été effectuées au poste occupé par les opérateurs lors des manipulations des produits, c'est-à-dire à 60 cm de la charge, avec et sans écran de protection biologique en kiowaglass autour des boîtes à gants utilisées pour la fluoration du plutonium. Dans le tableau II sont indiquées les valeurs mesurées avec différents instruments. On peut remarquer que la présence de l'écran de protection permet de réduire la valeur des débits d'équivalent de dose ambiant neutron $\dot{H}^*(10)$ d'un facteur 2. Les résultats des mesures et le calcul MCNP sont en très bon accord. Le système de sphères de BONNER n'a pu être utilisé en ce point, car la charge de plutonium ne pouvait pas être immobilisée suffisamment longtemps dans la boîte à gants pour permettre une mesure complète.

4.2.2. Spectres neutroniques calculés et mesurés

On observe l'effet des écrans de protection biologique en comparant les figures 3 et 4 dont les axes sont à la même échelle. On peut remarquer une diminution globale de la fluence neutronique ainsi qu'une dégradation du spectre vers les basses énergies. La présence des écrans permet donc de diminuer le débit d'équivalent de dose neutron d'un facteur 2.

4.3. Les mesures de la composante photonique

Le débit d'équivalent de dose ambiant dû à la composante photonique représente, suivant le point de mesure considéré, entre 15 % et 20 % du débit d'équivalent de

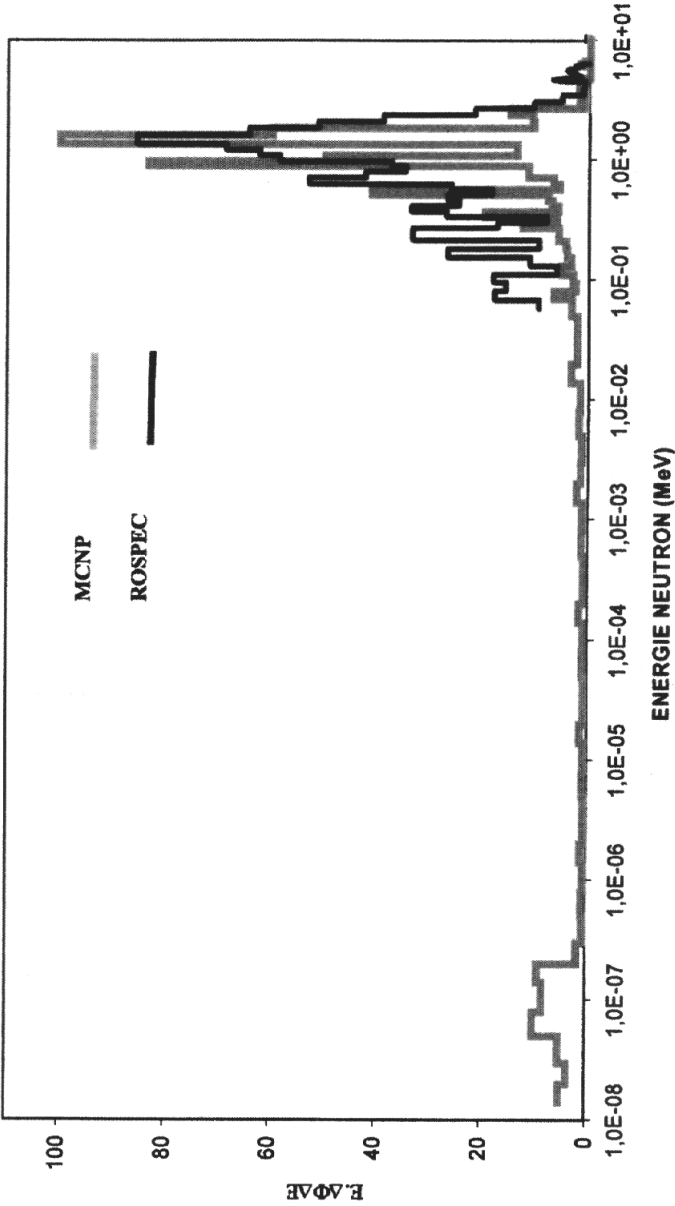


Figure 3 – Spectres MCNP et ROSPEC près de la boîte à gants « fluoration du plutonium » sans écran.
MCNP and ROSPEC spectra near unshielded glove box “plutonium fluoration”.

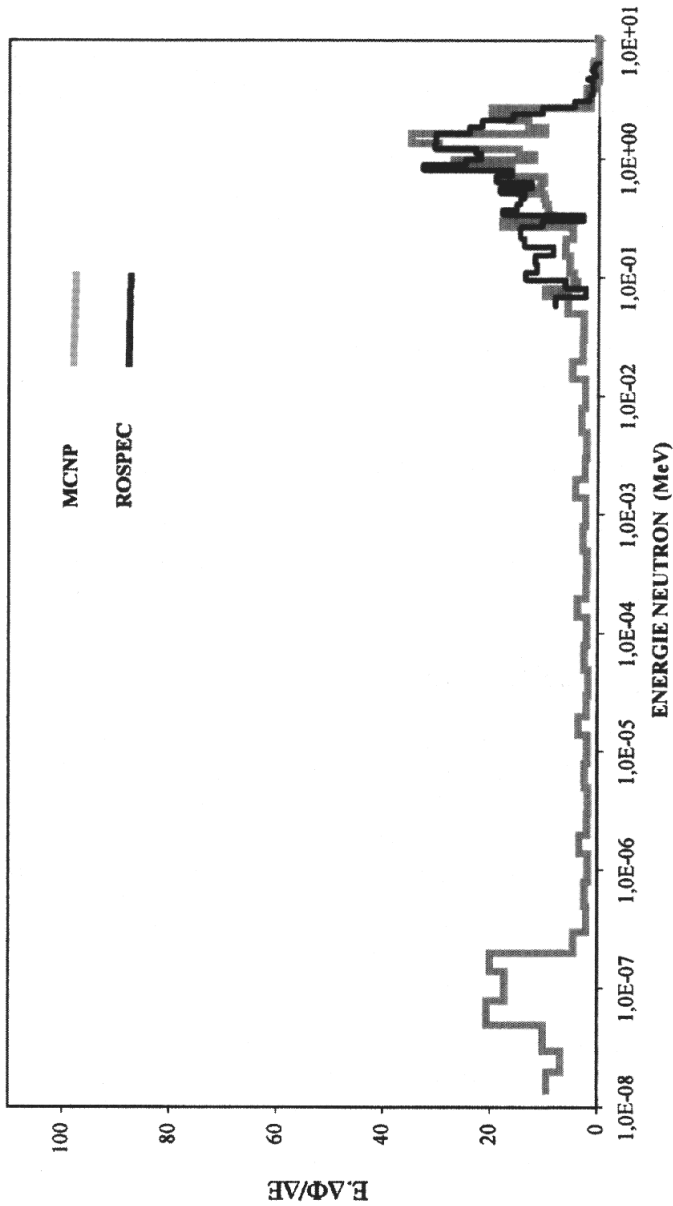


Figure 4 – Spectres MCNP et ROSPEC près de la boîte à gants « fluoration du plutonium » avec écran en kiowaglass.
MCNP and ROSPEC spectra near glove box “plutonium fluoration” with kiowaglass shielding.

TABLEAU III

Débits d'équivalent de dose ambiant photon aux postes de travail examinés.
Photon ambient dose equivalent rate at the workplaces.

Appareil utilisé	Milieu du stockage $\dot{H}^*(10)$ $\mu\text{Sv/h}$	Entre deux rangées $\dot{H}^*(10)$ $\mu\text{Sv/h}$	Fluoration du plutonium $\dot{H}^*(10)$ $\mu\text{Sv/h}$
FH 40 GL 10	$6,0 \pm 1,2$	$15,0 \pm 3,0$	$14,0 \pm 2,8$
Scintomat 6134A	$7,5 \pm 1,1$	$17,0 \pm 2,6$	$17,0 \pm 2,6$
Babyline 31	$10,0 \pm 2,5$	$21,0 \pm 5,3$	$25,0 \pm 6,3$
GM 1		$20,0 \pm 4,0$	$19,0 \pm 3,8$
GM2		$20,0 \pm 4,0$	$19,0 \pm 3,8$
Moyenne des mesures	$7,0 \pm 0,7$	$17,0 \pm 1,7$	$18,0 \pm 1,6$

dose ambiant neutron. Le tableau III présente les résultats dans le local de stockage et près de la boîte à gants. L'incertitude sur la valeur moyenne est de l'ordre de 10 %.

Les deux compteurs GM ont permis d'évaluer le débit d'équivalent de dose ambiant photon mais d'estimer aussi l'énergie moyenne du rayonnement photonique aux points étudiés. Pour les points dans le local de stockage, l'énergie moyenne est d'environ 200 keV ; pour le point près de la boîte à gants de fluoration, l'énergie moyenne est d'environ 160 keV (Itié *et al.*, 2001).

5. Étalonnage des PGP-DIN

Les coefficients d'étalonnage des dosimètres individuels ont pu être déterminés à partir des résultats issus des PGP-DIN et de l'équivalent de dose ambiant déterminé aux postes expertisés. Les valeurs de ce coefficient sont :

- 1,3 pour le poste fluoration (1 dans la publication 25 de la CIPR (ICRP, 1977)),
- 3 pour le stockage (2 dans la publication 25 de la CIPR (ICRP, 1977)).

Cette différence est due à la géométrie d'irradiation. Lorsque le champ est directionnel (poste de fluoration), le coefficient est faible alors qu'il est plus élevé pour des champs multidirectionnels (stockage)

Il est à noter que la définition de la grandeur équivalent de dose et du coefficient de conversion pour passer de la fluence à l'équivalent de dose a été modifiée par les recommandations de la publication 60 de la CIPR (ICRP, 1990).

Il apparaît que les nouveaux coefficients d'étalonnage à prendre en compte aux postes de travail étudiés conduisent à une augmentation de l'équivalent de dose neutron de 30 % à 50 % par rapport aux valeurs de la publication 25 de la CIPR (ICRP, 1977).

TABLEAU IV
Débits d'équivalent de dose ambiant moyens mesurés neutron et photon en $\mu\text{Sv/h}$.
Mean ambient dose equivalent rate for neutron and photon ($\mu\text{Sv/h}$).

	Milieu du stockage ($\mu\text{Sv/h}$)	Entre deux rangées ($\mu\text{Sv/h}$)	Fluoration du plutonium ($\mu\text{Sv/h}$)
$\dot{H}^*(10)$ moyen neutron	$74,0 \pm 6,6$	$141,0 \pm 12,7$	$93,0 \pm 8,4$
$\dot{H}^*(10)$ moyen gamma	$7,0 \pm 0,7$	$17,0 \pm 1,7$	$18,0 \pm 1,6$
$\frac{\dot{H}^*(10)n}{\dot{H}^*(10)\gamma}$	$11,0 \pm 1,4$	$8,0 \pm 1,0$	$5,0 \pm 0,7$

6. Conclusion

Les valeurs des débits d'équivalent de dose ambiant dus aux neutrons, mesurés à l'aide de techniques différentes (spectrométrie), ont donné des résultats cohérents entre eux pour les deux postes de travail expertisés dans les laboratoires de retraitement du plutonium du CEA de Valduc. Elles varient suivant les points de mesures considérés, de quelques $\mu\text{Sv/h}$ à plus d'une centaine de $\mu\text{Sv/h}$. Les valeurs moyennes des débits d'équivalent de dose ambiant sont résumées dans le tableau IV.

Les incertitudes sont données avec un facteur d'élargissement $k = 2$ (2σ) correspondant à un intervalle de confiance de 95 %.

Les distributions en énergie des fluences neutroniques montrent une contribution importante des neutrons émis par une source de Pu-F₄ (énergie autour de 1,5 MeV) avec une composante de neutrons de basse énergie variable suivant les postes de travail.

Les comparaisons entre les spectres neutroniques mesurés et calculés à l'aide du code MCNP montrent un accord global satisfaisant.

La variété des distributions observées confirme la nécessité d'effectuer un étalonnage spécifique des dosimètres individuels à albédo pour chaque poste de travail où les opérateurs sont amenés à les porter.

RÉFÉRENCES

- Bramblett R.L., Ewing R.J., Bonner T.W. (1959) A new type of neutron spectrometer, *Nucl. Instrum. Meth.* **9**, 1-12.
- Buxerolle M. (1987) Étude du D.I.N. dosimètre individuel de neutrons, Rapport CEA-R-53097.
- Buxerolle M., Chartier J.L., Kurkdjian J., Médioni R., Massoutié M., Posny F., De Matos E., Sueur M. (1988) Multisphères « F », *Rad. Prot. Dosim.* **23**, 285-288

- ICRP Publication 25 (1977) Handling, Use and Disposal of Unsealed Radionuclides in Hospitals and Medical Research Establishments, *Ann. ICRP* **1**(2).
- ICRP Publication 60 (1990) Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, *Ann. ICRP* **21**(1-3).
- ICRP Publication 74 (1996) Conversion coefficients for use in radiological protection against external radiation, *Ann. ICRP* **26**(3-4).
- Ing H., Clifford T., McLean T., Webb W., Cousins T., Dhermain J. (1997) ROSPEC – A simple reliable high resolution neutron spectrometer, *Rad. Prot. Dosim.* **70**(1-4), 273
- Toms M.E., Jones D.W. (1971) A neutron spectrometer using organic scintillator, NRL Report 7324.
- ISO-8529 (2001) International Standard Organisation, Rayonnements neutroniques de référence.
- Itié C., Muller H., Asselineau B., Alexandre Ph., Médioni R. (2001) Résultats de campagnes de mesures réalisées du 5 au 8 février et du 14 au 17 mai dans les laboratoires de l'unité de retraitement du plutonium située au bâtiment 118 du CEA Valduc, Rapport SDOS/2001-07.
- MCNP (1997) A general Monte Carlo N-Particle Transport Code version 4B. Diagnostic Application Group. LA-12625-M, *Los Alamos National Laboratory*.
- Wilson & Co. (1993) Development of the SOURCES code and data library for the calculation of neutron sources and spectra from (α , n) reactions, spontaneous fission, (β , n) delayed neutrons. LA-9841-PR, *Los Alamos National Laboratory*.